

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : **04-139078**

(43)Date of publication of application : **13.05.1992**

---

(51)Int.CI.

C04B 37/02  
B23K 20/00

---

(21)Application number : **02-258995**

(71)Applicant : **TOSHIBA CORP**

(22)Date of filing : **28.09.1990**

(72)Inventor : **ITSUDO YOSHIKO**

**UENO FUMIO**

**KASORI MITSUO**

**HORIGUCHI AKIHIRO**

---

### (54) PRODUCTION OF THERMALLY CONDUCTIVE BASE PLATE

#### (57)Abstract:

**PURPOSE:** To join a metallic member to an AlN-based base body at high joining strength by forming an oxidative film on the AlN-based base body by a sol-gel method in the case of producing a thermally conductive base plate wherein an aluminum nitride-based sintered body is used.

**CONSTITUTION:** An AlN-based base body is coated with a soln. formed of metallic alkoxide and an organic solvent. The coated film is allowed to gelatinize by a proper method. An oxidative film is formed by heat-treating the film allowed to gelatinize. In order to enhance wettability of the liquid phase of eutectic alloy which is formed of the metallic member to be joined together with oxygen, this oxidative film is formed in a preceding state of a joining stage. Thickness thereof is preferably regulated to  $\leq 5\mu\text{m}$  because the thermal expansion coefficient ordinarily differs from AlN. Then, this oxidative film is brought into contact with the metallic member and heated to join metal to the AlN-based base body via the oxidative film. Metal is joined to the AlN-based base body at high joining strength by this method. The thermally conductive base plate is obtained which is free from blistering, warpage, waviness and peeling.

---

#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

⑩ 日本国特許庁(JP)

⑪ 特許出願公開

## ⑫ 公開特許公報(A) 平4-139078

⑬ Int.Cl.<sup>3</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成4年(1992)5月13日

C 04 B 37/02  
B 23 K 20/00A 7202-4G  
A 8823-4E

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全4頁)

⑭ 発明の名称 熱伝導性基板の製造方法

⑮ 特 願 平2-258995

⑯ 出 願 平2(1990)9月28日

⑰ 発 明 者 五 戸 佳 子 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

⑰ 発 明 者 上 野 文 雄 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

⑰ 発 明 者 加 曾 利 光 男 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

⑰ 発 明 者 堀 口 昭 宏 神奈川県川崎市幸区小向東芝町1番地 株式会社東芝総合研究所内

⑰ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

⑰ 代 理 人 弁 理 士 鈴 江 武 彦 外3名

## 明 細 書

## 1. 発明の名称

熱伝導性基板の製造方法

## 2. 特許請求の範囲

窒化アルミニウム系基体に形成した金属アルコキシドのゲル化膜を熱処理して得られる酸化膜と金属部材とを接触させて加熱することを特徴とする熱伝導性基板の製造方法。

## 3. 発明の詳細な説明

## 〔発明の目的〕

(産業上の利用分野)

この発明は、窒化アルミニウム系凝結体を用いた熱伝導性基板の製造方法に関する。

(従来技術)

従来より、高熱伝導性の回路基板として、非酸化物系セラミック部材の窒化アルミニウム(AIN)セラミックスに金属部材の銅を接合したものが知られている。このような回路基板の製造方法としては、活性金属のTi、Zrのペーストや箔をAINセラミック部材と銅部材との間に

挟み込み、真空中で加熱することによって接合するものがある。このような製造方法の典型的な例は特開昭60-32343号公報中に記載されている。しかし、この方法によりこのような回路基板を製造する場合には、ペーストを塗布したり、接合すべき両部材の大きさに箔を切断することが必要となり、さらに、真空中での加熱接合を行うため、加熱炉としてバッチ式炉が必然的に必要となる。従って、この方法では量産性に欠けるのは明らかである。

AINセラミック部材に銅部材を接合するための他の方法が特開昭59-3077号公報に開示されている。この方法は、AINセラミック部材の表面を酸化し、次いで酸素を1000~2000ppm含有する銅部材をこのAINセラミックス部材に接触させて固定し、その後、これら部材を一体化したものを窒素やアルゴンなどの不活性ガス雰囲気中で加熱するものである。そして、ここで述べられているAIN部材の表面酸化は、AINセラミック部材を空気中で1000~

1400℃に加熱するか、あるいはウェットフォーミングガス ( $H_2 + N_2$ ) 中で1250～1500℃に加熱して酸化処理を行うことによりなされる。しかしながら、実際にこの方法によって形成される酸化層は、むらがあり、ひび割れなどが観察され、しかもポーラスである。このため、酸化層の無い部分が存在し、その部分では銅部材がAlNセラミック部材と接合しないため、接合強度が低くなってしまう。また、酸化層が無い部分はAlNセラミックスが直接表面に露出しているので、AlNと銅とが直接接触しており、高温雰囲気になるとCu<sub>2</sub>Oの共晶液相とAlNとが反応してNO<sub>2</sub>が発生する可能性があり、基板の膨れ、反り、うねり、はがれなどの原因となってしまう。

(発明が解決しようとする課題)

この発明はこのような課題を解決するためになされたもので、高接合強度で窒化アルミニウム基体上に金属を接合することができ、膨れ、反り、うねり、はがれ等が存在しない熱伝導性基板の製

しい。酸化膜を形成するための金属アルコキシドは、金属の種類に応じて種々のものが用いられるが、酸化膜が酸化アルミニウム製の場合には、トリメトキシアルミニウム、トリエトキシアルミニウム、トリ-n-プロポキシアルミニウム、トリ-*i*-プロポキシアルミニウム、トリ-n-ブトキシアルミニウム、トリ-*i*-ブトキシアルミニウム、トリ-sec-ブトキシアルミニウム、トリ-*t*-ブトキシアルミニウムなどを用いることができる。また、金属アルコキシドが混合される有機溶媒としては、金属アルコキシド溶液を形成することができ、かつゾルゲル法を適用できるものであればよく、2-ブタノール、2-プロパノールなどが例示される。

これらの金属アルコキシド及び有機溶媒により形成される溶液は、基体上に塗布できるようにある程度粘性があるものであることが望ましい。この金属アルコキシド溶液調整後、溶液はAlN系基体上に塗布される。この塗布処理の手法は問わないが、上記溶液にAlN系基体を浸漬し所定濃

度方法を提供することを目的とする。

[発明の構成]

(課題を解決するための手段)

この発明に係る熱伝導性基板の製造方法は、窒化アルミニウム系基体に形成した金属アルコキシドのゲル化膜を熱処理して得られる酸化膜と金属部材とを接触させて加熱することを特徴とする。

この発明は、金属アルコキシドを用いたゾルゲル法により窒化アルミニウム (AlN) 系基体上に酸化物膜を形成し、この酸化膜を介してAlN基体と金属とを接合することにより熱伝導性基板を製造する方法を提供するものである。

この発明において、AlN系基体としてはAlN焼結体を用いるが、この焼結体はAlN単体でもよく、またAlNに酸化イットリウム、酸化カルシウム等の焼結助剤を添加したものであってもよい。

本発明において、AlN系基体上に形成される酸化膜材料は金属酸化物であればよいが、酸化アルミニウム ( $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) であることが好ま

し度で引き上げることにより塗布することが好ましい。

このようにして形成された塗布膜は適宜の方法によりゲル化される。この場合のゲル化は、通常、室温で塗布膜を乾燥させることにより達成されるが、これに限定されない。

次いで、このゲル化膜に対して熱処理 (焼鈍処理) が施され、酸化膜が形成される。この焼鈍処理は300～1300℃で1～10時間行うことが好ましく、処理後は炉内において徐冷される。従来の熱伝導性基板においては、酸化膜を形成するための熱処理温度が高く、最低でも800℃程度であったが、この発明の場合には、従来の処理温度よりも著しく低温化することができる。

この酸化膜は、接合しようとする金属部材と酸素とで形成される共晶合金液相の濡れ性を向上させるために接合工程の前工程で形成されるものである。この酸化膜は、通常、熱膨張率がAlNとは異なっており、特に酸化膜が $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の場合には熱膨張率がAlNよりも大きいため、厚

すぎるとピール強度の低下につながる。従って、酸化膜の厚さは $5\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。また酸化膜にむらが存在すると、 $\text{AlN}$ 相が直接金属部材に接する部分が出てくる。このような部分が存在すると、接合温度で共晶合金液相が $\text{AlN}$ によって還元される恐れがある。従って、むらが生じない $100\text{\AA}$ 以上の厚さであることが好ましい。酸化膜の形成に際しては、例えば浸漬等を複数回繰り返しても良い。

この酸化膜に金属部材を接触させて加熱することにより、 $\text{AlN}$ 基体と金属部材とが接合される。金属部材を構成する材料は特に限定されないが、銅であることが好ましい。この場合の加熱は、不活性ガス雰囲気において、金属部材の融点以下で、かつこの金属と酸素との共晶合金の共晶温度以上の温度で行うことが好ましい。なお、不活性ガスとしては、窒素、アルゴン、ヘリウム等が好適である。

この発明においては、金属部材中に予め含有される酸素量が、金属部材を接合する上で極めて重

要量は $1000\text{ppm}$ 以下であることが好ましい。銅部材におけるさらに好ましい酸素含有量の範囲は $100\sim600\text{ppm}$ である。

加熱の際の雰囲気は、上述のように不活性ガス雰囲気で行うが、雰囲気中に共晶合金の平衡酸素分圧以上の酸素を含んでいることが好ましい。この値よりも酸素量が少ないと共晶合金が分解してしまうからである。一方、酸素量が多すぎると金属部材が過剰に酸化して回路基板としての使用が困難となる。

金属として銅を用いた場合には、雰囲気中の酸素量は $2\sim1000\text{ppm}$ であることが好ましい。共晶温度の $1065^\circ\text{C}$ での $\text{Cu}_2\text{O}$ の平衡酸素分圧は $1.6\times10^{-6}$ 気圧であるから、この値よりも炉内雰囲気中の酸素量が少ないと $\text{Cu}_2\text{O}$ が分解し、共晶合金液相も同様に分解する。従って、接合に関与する接合剤の量が少なくなるため、 $\text{AlN}$ 基材と銅部材との接合が十分に行われなくなる。このような観点から雰囲気中の酸素量は $2\text{ppm}$ 以上が好ましい。また、接合温度での平衡

要である。つまり、この発明では、共晶合金を形成するための酸素を雰囲気中から供給することは意図していない。これは、金属として銅を用いた酸化膜として $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ を用いた場合に、雰囲気からの酸素の供給を試みた結果、銅部材の酸化が激しく起こることを実験的に確認したからである。金属部材中に含有される酸素量は、酸化膜全面を濡らすのに必要な量の共晶合金液相を生成する量以上であることが強固な接合を得る上で望ましい。酸化膜として $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、金属部材として銅を用いた場合には、この量は実験的に $50\text{ppm}$ であることを見出した。つまり、 $50\text{ppm}$ 未満の含有量の場合には、銅部材から接合に十分な量の共晶合金液相が生成しないため、微視的には部分的にしか接合されず、十分なピール強度を得ることができなくなる。また、逆に金属部材に予め含まれる酸素量が多すぎると金属部材表面の荒れの原因となる。金属部材の表面の荒れは、回路基板にとっては欠点となる。金属部材として銅を用いた場合には、このような観点から酸素の含

分圧を大きく越える酸素が雰囲気中に存在すると、銅の強固な酸化をもたらす、回路基板としてそのまま使用することが困難となる。従って、形成された酸化膜の除去が別の工程として必要になるが、反応時間が数秒間から数分間の短時間であり、雰囲気中の酸素量が平衡酸素分圧よりもわずかに多い程度の含有量である限り、際立った酸化反応は確認されず、セラミック回路基板としては実用上問題とならない。本願発明者らの実験によれば、このような酸素量は $1000\text{ppm}$ 以下であった。また、平衡酸素分圧よりも雰囲気中の酸素量がわずかに少ない程度では、共晶合金液相はほとんど還元されず、予め酸素量の多い銅を用いることによって、酸素を多少補うことができる。しかし、雰囲気中の酸素量が $2\text{ppm}$ 以下の場合には、 $1000\text{ppm}$ の酸素を含む銅を用いてもピール強度は実用上許容できる強度よりも小さい強度となる。

このようにして形成された熱伝導性基板においては、均一でむらのない緻密な酸化膜が存在する

ので、金属部材が高接合強度でAlN基体に接合され、かつ基板の膨れ、反り、うねり、はがれ等が存在しない。

(実施例)

以下、この発明の実施例について説明する。

脱酸素雰囲気中で、トリセコーストキシアルミニウムを2-ブタノール溶液中に装入し、攪拌、還流した後、金属アルコキシドに対して1/100重量の水を2-ブタノールに希釈し、これを沈殿が生じないようにゆっくりと加え、部分加水分解を行った。さらに、この溶液に解膠剤として塩酸を添加し、攪拌、還流を行って溶液濃度を0.1Mとした。この溶液にAlN基体を浸漬して溶液膜を基体表面に塗布した。そしてこの膜を室温で乾燥させてゲル化膜とした。なお、AlN基体としては、焼結助剤として酸化イットリウムを3重量%含有するAlN焼結体であって、35×35×0.7mmの板状のものをを用いた。

次に、ゲル化膜が形成された基体に対して、650℃の窒素気流中で1時間の焼鈍処理を施

した後徐冷し、基体の両表面に約200Åの $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>膜を形成した。

このような酸化膜が形成された基体の両表面に、10×50×0.3mmの寸法を有し、400ppmの酸素を含有する板状銅部材を接触させ、酸素を7ppm含有する窒素ガス雰囲気中で、最高温度1070℃で3分間保持する条件で加熱した。ほぼ室温まで冷却して接合状態を調べた結果、銅部材が強固に接合されていることが確認された。

比較例として、実施例で使用したAlN基体に酸化膜を形成せずに銅部材を接合させた。ここで銅部材としては実施例と同様400ppmの酸素を含有するものを用いた。基体に銅部材を接触させて実施例と同様に加熱した結果、一部のみしか接合されていないことが確認された。

[発明の効果]

この発明によれば、AlN系基体上に、金属アルコキシドを用いたゾルゲル法を用いて酸化膜を形成するので、酸化膜が均一でむらのない緻密なものとなる。その結果、この酸化膜を介して高接

合強度でAlN基体に金属部材を接合することができ、また基板の膨れ、反り、うねり、はがれ等の無い熱伝導性基板を得ることができる。

出願人代理人 弁理士 鈴江 武彦